

KFK-294

**KERNFORSCHUNGSZENTRUM
KARLSRUHE**

Januar 1965

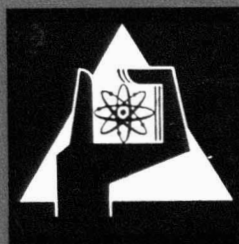
*Gesellschaft für Kernforschung m. b. H.
Zentralbücherei
23 Juni 1965*

KFK 294

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Zur Härtung thermischer Neutronenspektren in Wasser
und Borsäurelösung

K. Burkart



GESELLSCHAFT FÜR KERNFORSCHUNG M. B. H.

KARLSRUHE

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Januar 1965

KFK 294

Institut für Neutronenphysik und Reaktortechnik

Zur Härtung thermischer Neutronenspektren
in Wasser und Borsäurelösung

K. Burkart

Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe

Zusammenfassung

Thermische Neutronenspektren in Wasser und wässriger Borsäurelösung wurden nach der integralen Methode mit Hilfe der Aktivierung von Lutetium- und Kupfersonden untersucht und die Ergebnisse mit Messungen nach der Flugzeitmethode und mit den Voraussagen des Nelkinmodells für die Thermalisierung von Neutronen verglichen. Die Übereinstimmung mit den Flugzeitmessungen und den Voraussagen des Nelkinmodells war gut, während die Härtung des Spektrums stärker erscheint als in manchen früheren Veröffentlichungen angegeben wurde.

Einleitung

1958 regte Westcott an [1] , Lu^{176} wegen seiner großen Einfangresonanz bei 0,142 eV zur Messung der "Neutronentemperatur" thermischer Spektren zu verwenden. Derartige Experimente wurden von G.A. Price [2] und von L.C. Schmid und W.P. Stinson [3] durchgeführt. Sie verglichen die Aktivierung von Lu^{176} mit derjenigen eines $1/v$ -Detektors in aufgeheiztem Graphit und zeigten, daß das Aktivierungsverhältnis ein empfindliches Maß für die Graphittemperatur darstellt. Im vorliegenden Bericht wird die Anwendung dieser Methode zur Bestimmung der Härtung thermischer Neutronenspektren in Wasser und wässriger Borsäurelösung diskutiert und die Ergebnisse mit anderen Veröffentlichungen verglichen.

Versuchsdurchführung

Als Behälter für die verschiedenen Borsäurelösungen dienten Plexiglas-kästen mit einer Kantenlänge von 30 cm x 30 cm x 25 cm, in deren Zentrum Lutetium- und Kupfersonden paarweise befestigt waren. Diese Anordnung wurde im Becken des Münchener Schwimmbad-Reaktors (FRM) bestrahlt, wobei die Entfernung zum Graphitreflektor so gewählt wurde, daß das Cadmium-verhältnis in diesem Gebiet nur eine geringe Ortsabhängigkeit zeigte. Die Größe der Behälter ist ausreichend, um in ihrem Zentrum das thermische Neutronenspektrum eines "unendlich ausgedehnten" Borsäuremediums zu gewährleisten.

Die Lutetiumsonden wurden nach dem Sedimentationsverfahren hergestellt und wiesen eine Flächenbelegung von etwa $1,5 \text{ mg Lutetiumoxyd pro cm}^2$ auf, während die Kupfersonden aus 8μ dicker Elektrolytkupferfolie gestanzt und zur Eichung gewogen waren. Da die Lutetiumsonden infolge ihres ungünstigen Gewichtsverhältnisses zwischen Lutetiumoxydbelag und Sondenhalterung auf diese Weise nicht geeicht werden konnten, wurden sie einer Drehtellerbestrahlung im FRM ausgesetzt und so auf einen Standard bezogen.

Die geringe Sondendicke erlaubte es, die Selbstabschirmung und die gegenseitige Aktivierungsstörung zu vernachlässigen, obwohl je eine Cu- und Lu-Sonde bei der Bestrahlung unmittelbar aufeinander lagen. Die Sonden wurden mit und ohne Cadmiumumhüllung bestrahlt (Cadmiumdicke 1 mm) und in 2π -Methan-Durchflußzählern ausgezählt. Zur Berechnung der absoluten Zerfallsrate bei Sättigungsaktivierung aus der 2π -Zählrate benötigt man neben den üblichen Zeitkorrekturen einen Eichfaktor a , der nur sehr umständlich und ungenau berechnet werden kann. Er berücksichtigt die absolute Flächenbelegung des Lutetiumstandards, die β -Selbstabsorption in den Sonden, Sondenhaltern und Schutzfolien, Geometrie- und Rückstreuungseffekte im Zählrohr und die Ansprechwahrscheinlichkeiten beim Zählen. Zur experimentellen Bestimmung dieses Faktors wurde die unten zu besprechende Eichbestrahlung in der thermischen Säule des Forschungsreaktors Frankfurt (FRF) durchgeführt.

Die Mittelwerte aus den Meßergebnissen sind in Tabelle I aufgezählt.

Analyse der Ergebnisse nach der Westcott-Konvention [4]

Mit Hilfe der Westcott-Konvention kann man für das Verhältnis der gemessenen Lu¹⁷⁷ - zu Cu⁶⁴ -Sättigungsaktivität eines Sondenpaars folgenden Ausdruck herleiten:

$$\frac{A^{Lu}}{A^{Cu}} = G \frac{g^{Lu}(T) + rs^{Lu}(T)}{1 + rs^{Cu}(T)} \quad (1)$$

g, r und s haben die übliche Bedeutung, während G neben den im vorhergehenden Abschnitt beim Erläutern des Richfaktors a genannten Größen für Lu¹⁷⁶ und Cu⁶³ noch die absoluten Aktivierungsquerschnitte beider Isotope enthält. r und die Neutronentemperatur T sind unbekannt, G zu berechnen ist schwierig. - In der thermischen Säule eines Reaktors, hinreichend weit entfernt vom Reaktorkern, sind jedoch die Neutronen im thermischen Gleichgewicht mit dem Moderator und bilden eine Maxwellverteilung, der die Moderatortemperatur zugeordnet werden kann: $T = T_M$. Bei Bestrahlungen in einer Graphitsäule gilt demnach analog zu (1) mit $r = 0$

$$\frac{A^{Lu}}{A^{Cu}} = G \cdot g^{Lu}(T_M) \quad (2)$$

und G ist damit experimentell bestimmt. Die zugehörigen Bestrahlungen wurden im FRF durchgeführt.

Formt man Gl.(1) um in

$$\frac{A^{Lu}}{G \cdot A^{Cu}} = \frac{g^{Lu}(T) + rs^{Lu}(T)}{1 + rs^{Cu}(T)}, \quad (3)$$

dann ist die linke Seite der Gl.(3) aus den Experimenten bekannt, während die rechte Seite weiterhin die Unbekannten T und r enthält. Eine zweite Beziehung zwischen diesen beiden Variablen gilt nach Westcott für das Cadmiumverhältnis R_{Cd} von Kupfer

$$r \sqrt{\frac{T}{T_0}} = \frac{1}{(R_{Cd} - 1) \epsilon^{Cu} \sqrt{\frac{T_0}{T}} + 0,437 R_{Cd}} \quad (4)$$

= d

Die rechte Seite der Gl.(4), zur Abkürzung d genannt, hängt nicht von T ab, da

$$s^{\text{Cu}} \sqrt{\frac{T_0}{T}} = \frac{1}{\sigma_0} \sqrt{\frac{4}{\pi}} \Sigma' .$$

Für Σ' kann man bei Kupfer den Wert des Überschußresonanzintegrals verwenden und erhält

$$s^{\text{Cu}} \sqrt{\frac{T_0}{T}} = 0,723 .$$

Durch Messung des Cadmiumverhältnisses gewinnt man also d und damit

$$rs^{\text{Cu}} = 0,723 d .$$

Die Gln.(3) und (4) ergeben schließlich

$$\frac{A^{\text{Lu}}}{G \cdot A^{\text{Cu}}} (1 + rs^{\text{Cu}}) = g^{\text{Lu}}(T) + d \sqrt{\frac{T_0}{T}} s^{\text{Lu}}(T)$$

als Bestimmungsgleichung für T .

Bei der numerischen Auswertung der vorangegangenen Gleichungen wurde angenommen, daß das Überschußresonanzintegral von Cu^{63} 2,82 b und sein 2200 m/sec-Aktivierungsquerschnitt 4,3 b betragen. $s^{\text{Lu}}(T)$ wurde von Westcott [5] für zwei verschiedene Übergänge, sogenannte joining functions, vom thermischen zum epithermischen Spektrum tabelliert. Der Unterschied in der Neutronentemperatur bei der Verwendung der einen oder anderen Tabelle beträgt maximal 5° . Da Westcott seinen s^{Lu} -Tabellen die beiden Extremfälle der "joining function" zugrunde legt, ist in Abbildung I und Tabelle II ein Mittelwert angegeben.

Auch die $g^{\text{Lu}}(T)$ -Werte sind von Westcott [5] tabelliert worden. Daneben wurden jedoch selbst berechnete $g^{\text{Lu}}(T)$ -Werte verwendet, denen die Lu^{176} -Resonanzparameter von Roberge und Sailor [6] zugrunde liegen. Beide Fälle sind in Tab. II angegeben, und man sieht, daß die errechneten Neutronentemperaturen nicht stark von den verwendeten Lu^{176} -Resonanzparametern abhängen.

Vergleich mit der Theorie

Thermische Spektren können durch geeignete Annahmen über die Energie-
wechselwirkung zwischen dem Streumedium und den Neutronen berechnet wer-
den. Eine solche Rechnung hat J.R. Beyster für Borsäurelösungen verschie-
dener Konzentration durchgeführt, wobei er das Nelkin'sche Thermalisie-
rungsmodell zugrunde legte und ein unendlich großes Wasservolumen mit ho-
mogener Quellverteilung voraussetzte. Im Gegensatz dazu wurden die vor-
liegenden Messungen in einem Neutronenfeld durchgeführt, in dem zwar das
Cadmiumverhältnis konstant war, aber ein Flußgradient vorlag. Der Fluß
fiel am Meßort etwa exponentiell mit einer Relaxationslänge von mehr als
5 cm ab. Die hierdurch bedingte "Diffusionshärtung" [7] betrug jedoch
weniger als 1^0 , so daß sie im folgenden vernachlässigt werden kann und
ein Vergleich der integralen Messungen mit den Spektren möglich ist. Da-
bei wird keinerlei Gebrauch von der "Neutronentemperatur" oder der West-
cott-Konvention gemacht. Nur die Zählraten werden berücksichtigt. Durch
Mittelung des Lu^{176} - und Cu^{63} -Aktivierungsquerschnitts über die Spektren
von Beyster ist es nämlich möglich, das Aktivierungsverhältnis

$$\frac{\bar{C}^{\text{Lu}}}{\bar{C}^{\text{Cu}}} = \frac{\int \sigma^{\text{Lu}}(E) \phi(E, \sigma_{\text{eff}}) dE}{\int \sigma^{\text{Cu}}(E) \phi(E, \sigma_{\text{eff}}) dE}$$

voraussagen, wobei $\bar{C}^{\text{Lu}} = C^{\text{Lu}}/N^{\text{Lu}}$, $\bar{C}^{\text{Cu}} = C^{\text{Cu}}/N^{\text{Cu}}$ und N die Zahl der
aktivierbaren Sondenatome ist. Um keine Annahmen über die epithermische
Aktivierung machen zu müssen, ist es vorteilhafter, allein die thermi-
sche, wie man sie durch eine Cadmiumdifferenzmessung erhält, zu betrach-
ten und den Ausdruck

$$\frac{\bar{C}^{\text{Lu}} - \bar{C}_{\text{Cd}}^{\text{Lu}}}{\bar{C}^{\text{Cu}} - \bar{C}_{\text{Cd}}^{\text{Cu}}} = \frac{\int_0^{1\text{eV}} \sigma^{\text{Lu}}(E) \phi(E, \sigma_{\text{eff}}) \left(1 - E_2(\Sigma_{\text{Cd}}(E)d_{\text{Cd}})\right) dE}{\int_0^{1\text{eV}} \sigma^{\text{Cu}}(E) \phi(E, \sigma_{\text{eff}}) \left(1 - E_2(\Sigma_{\text{Cd}}(E)d_{\text{Cd}})\right) dE} \quad (5)$$

zu berechnen. $E_2(\Sigma_{\text{Cd}}(E)d_{\text{Cd}})$ ist die bekannte 2. Exponentialintegralfunk-
tion zur Beschreibung der Absorption in einem 1 mm dicken Cadmiumfilter.
Außerdem ist von der in Anbetracht der Meßgenauigkeit sicher erlaubten
Näherung Gebrauch gemacht, daß die Aktivierung einer Sonde durch Neu-
tronen mit Energien $> 1\text{eV}$ von einem Cadmiumfilter nicht beeinflusst
wird, und man folglich die Integration bei 1eV abbrechen kann.

Gl.(5) gibt das Verhältnis der Lu^{176} - zur Cu^{63} -Aktivierung an, während beim Vergleich mit den Meßergebnissen zu den Sättigungsaktivitäten übergegangen werden muß. Dabei tritt wiederum ein Eichfaktor auf, den man gewinnt, indem man die Integration nach Gl.(5) nicht nur mit den Spektren von Beyster sondern auch mit einer Maxwellverteilung von 20°C durchführt und das Ergebnis mit der Messung in der thermischen Säule des FRF ($T_M = 20^\circ\text{C}$) vergleicht. Damit wird auch hier bei der Normierung der berechneten Werte auf die Meßergebnisse von der Tatsache Gebrauch gemacht, daß in der thermischen Säule des FRF das thermische Neutronenspektrum einer Maxwellverteilung mit Moderator Temperatur gehorcht. Die Ergebnisse des Vergleichs mit der Theorie zeigt Abb. II.

Vergleich mit Messungen nach der Flugzeitmethode

Zu Beginn des Jahres 1962 wurden von W. Reichardt differentielle Spektrumsmessungen an Borsäurelösungen nach der Flugzeitmethode durchgeführt. Er bestimmte u.a. die Energieverteilung thermischer Neutronen im Zentrum von würfelförmigen Borsäurevolumina mit einer Kantenlänge von 30 cm. Die Versuchsanordnung ist im wesentlichen in [8] beschrieben. Es zeigte sich, daß der thermische Teil der Spektren gut durch eine Maxwell-Verteilung angenähert werden kann. Abweichungen davon treten nur bei Energien $< 0,01$ eV auf. Damit ist die Anwendung des Temperaturkonzepts zur Auswertung integraler Messungen gerechtfertigt. Die aus den Spektren ermittelten "Neutronentemperaturen" sind in Abb. I enthalten. Es besteht eine gute Übereinstimmung mit der integralen Methode.

Zusammenfassung und Diskussion der Ergebnisse

Die Experimente im Becken des FRM haben gezeigt, daß sich die Kombination Lutetium - Kupfer gut für Spektrumsmessungen nach der integralen Methode eignet. Um genauere Aussagen aus den Meßergebnissen gewinnen zu können, wäre es wünschenswert, den Verlauf des Aktivierungsquerschnitts von Lu^{176} und der "joining function" noch besser zu kennen. Die Auswertung der Meßergebnisse nach dem Temperaturkonzept ist vernünftig, da der thermische Teil der Spektren in Borsäurelösung gut durch eine Maxwell-Verteilung

angenähert werden kann. In Abb. I sind die erhaltenen "Neutronentemperaturen" mit denjenigen von Poole [9] bzw. Reichardt verglichen. Obwohl sich die Fehlergrenzen überlappen, scheinen die "Temperaturen" von Poole stets kleiner zu sein. Die Übereinstimmung mit Reichardt ist gut. Abb. I zeigt ebenfalls einen größeren Unterschied zu den Temperaturwerten, die nach der Formel von Coveyou [10] bzw. nach der Theorie von Brown [11] zu erwarten sind. Ein Vergleich der integralen Messungen mit differentiellen Messungen und berechneten Spektren ist auch ohne Benutzung des Temperaturkonzepts möglich. Die Übereinstimmung ist für die höheren Borsäurekonzentrationen, unabhängig von den verwendeten Resonanzparametern des Lu^{176} , gut, während im übrigen eine kleine Diskrepanz zwischen den Voraussagen des Nelkin-Modells einerseits und den aus integralen und differentiellen Meßmethoden erhaltenen Werten andererseits auftritt (Abb. II).

Meinen besonderen Dank aussprechen möchte ich Herrn Professor Dr. K.Wirtz für die Anregung zu dieser Arbeit, Herrn Professor Dr. K.H.Beckurts für seine stete Förderung und zahlreiche wertvolle Hinweise und Diskussionen und Herrn Dipl.-Phys. W. Reichardt für das Überlassen seiner Meßergebnisse.

Literatur

- [1] C.H. Westcott, Report CRRP-737 (1958)
- [2] G.A. Price, J. Nuclear Energy, Part A 10, 157 (1959)
- [3] L.C. Schmid und W.P. Stinson, Nuclear Science and Engineering 7, 477 (1960)
- [4] C.H. Westcott et al., 2. Genfer Konferenz, Paper 202 (1958)
- [5] C.H. Westcott, Report AECL-1101, 14 (1960)
- [6] J.P. Roberge und V.L. Sailor, Nuclear Science and Engineering 7, 502 (1960)
- [7] K. Wirtz und K.H. Beckurts, Elementare Neutronenphysik (1958)
- [8] K.H. Beckurts und W. Reichardt, Proceedings of the Symposium on Neutron Time-of-Flight Methods, Saclay, 239 (1961)
- [9] M.J. Poole et al., J. Nuclear Energy 5, 325 (1957)
- [10] R.R. Coveyou et al., J. Nuclear Energy 2, 3 (1956)
- [11] H.D. Brown, du Pont Report DP-64

Tabelle I

Verhältnis der Sättigungsaktivität von Lu¹⁷⁷ und Cu⁶⁴

$\sigma_a \text{ eff}$ [barn/H-Atom]	$\frac{A_{\text{Cu}}}{A_{\text{Cd}}}$	$\frac{A_{\text{Lu}}}{A_{\text{Cu}}}$ [willk. Einheiten]	$\frac{A_{\text{Lu}} - A_{\text{Cd}}}{A_{\text{Cu}} - A_{\text{Cd}}}$ [willkürliche Einh.]
Graphit	-	0,45(56 _± 50)	0,45(56 _± 50)
0,332	33,0	0,45(84 _± 50)	0,46(23 _± 70)
1,37	18,26	0,49(19 _± 75)	0,51(32 _± 90)
2,30	10,71	0,57(25 _± 77)	0,5(529 _± 110)
3,33	6,35	0,52(32 _± 80)	0,5(972 _± 120)
4,24	5,60	0,54(29 _± 81)	0,6(350 _± 130)

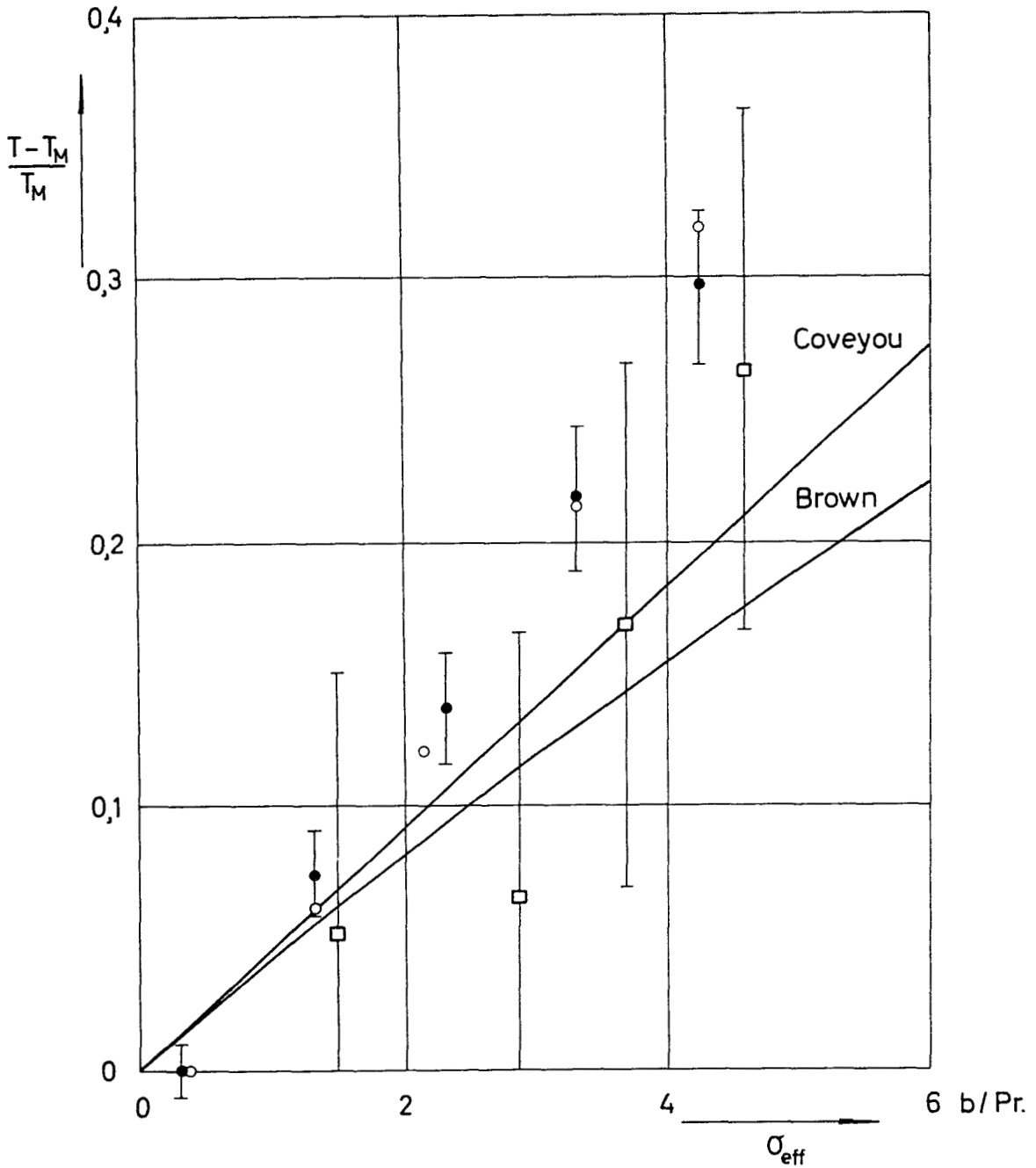
A = Sättigungsaktivität der unbedeckten Folien

A_{Cd} = Sättigungsaktivität der cadmiumbedeckten Folien

Tabelle II

"Neutronentemperaturen" in Borsäurelösungen verschiedener Konzentration

$\sigma_a \text{ eff}$ [barn/H-Atom]	g-Werte nach Westcott [5]			Eigene g-Werte nach [6]		
	T [°K]	$\frac{T - T_M}{T_M}$	r	T [°K]	$\frac{T - T_M}{T_M}$	r
0,332	294,5 _± 2	0,00(48 _± 68)	0,0104	294,5 _± 2	0,00(48 _± 68)	0,0104
1,37	316 _± 3	0,0(78 _± 10)	0,0471	315 _± 3	0,0(75 _± 10)	0,0471
2,30	334 _± 3	0,1(40 _± 10)	0,0800	333 _± 3	0,1(35 _± 10)	0,0802
3,33	359 _± 4	0,2(25 _± 14)	0,125	356 _± 4	0,2(13 _± 14)	0,126
4,24	385 _± 5	0,3(15 _± 17)	0,151	380 _± 5	0,2(96 _± 17)	0,152



- T Neutronentemperatur in °K
- T_M Moderatortemperatur in °K
- Werte nach Reichardt
- Werte nach Poole
- Werte nach der integralen Methode (Mittelwerte)

Abb. I. Verhältnis der „Temperaturverschiebung“ des Neutronenspektrums zur Moderatortemperatur nach der integralen Methode und den Ergebnissen von Brown, Coveyou, Poole und Reichardt

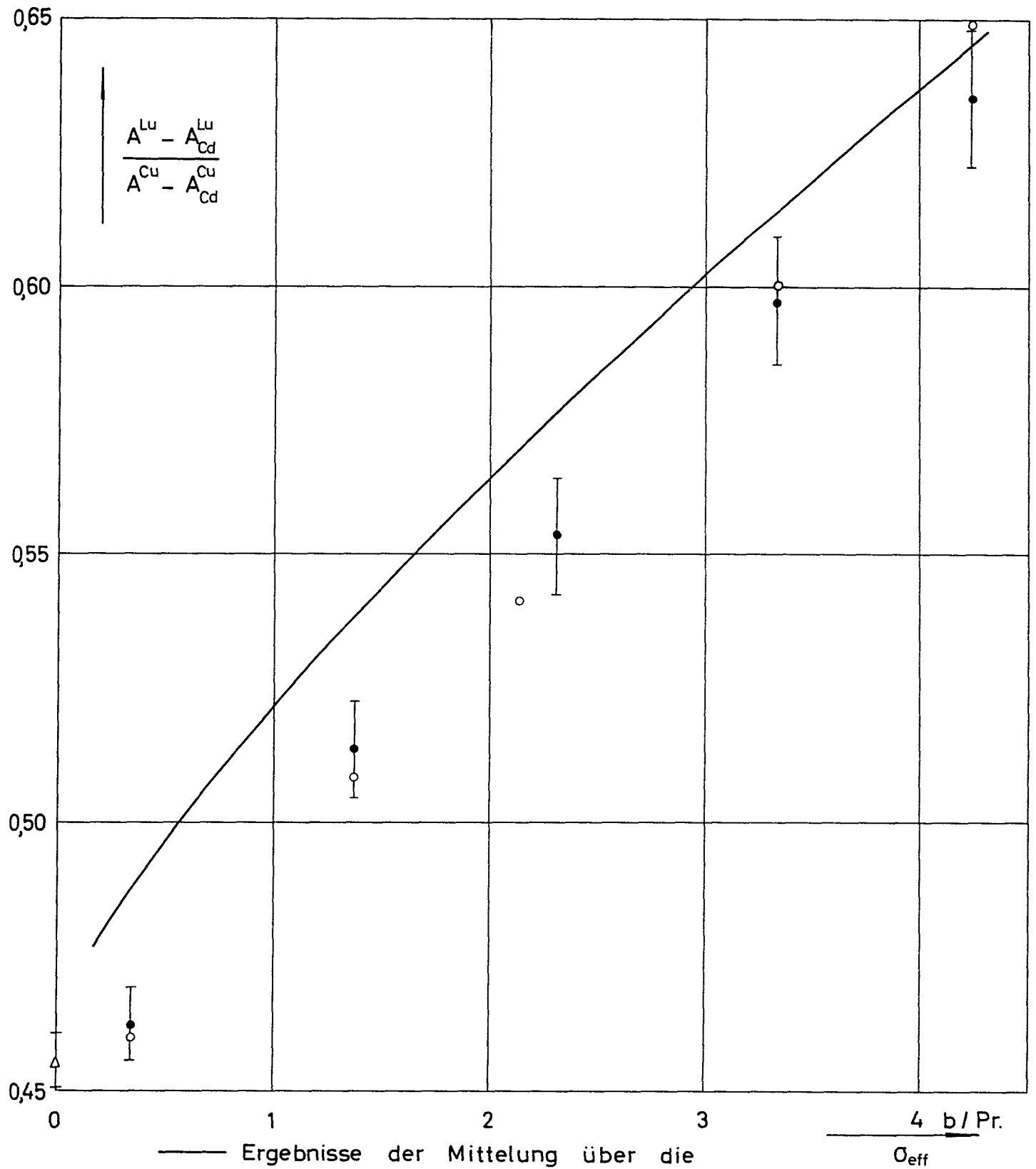


Abb. II. Verhältnis der thermischen Aktivierung von Lu^{176} und Cu^{63}